УДК 539.12.04

ПРОСТРАНСТВЕННОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ И АТОМНОЕ СТРОЕНИЕ РАДИАЦИОННЫХ ПОВРЕЖДЕНИЙ В ОБЛУЧЕННОЙ НЕЙТРОНАМИ ПЛАТИНЕ

В.А. Ивченко, Е.В. Попова, В.В. Овчинников, А.В. Козлов*

Институт электрофизики УрО РАН. г. Екатеринбург
*ФГУП «Институт реакторных материалов». г. Екатеринбург
E-mail: ivchenko@iep.uran.ru

Методом полевой ионной микроскопии установлено пространственное распределение и атомное строение радиационных повреждений в Pt, облученной в реакторе ИВВ-2М при температуре ~310 К до флюенсов промежуточных и быстрых (E>0,1 МэВ) нейтронов: $6{,}7\cdot10^{21}$ и $3{,}5\cdot10^{22}$ м$^{-2}$. Экспериментально измерена концентрация радиационных нарушений – $9\cdot10^{22}$ м$^{-3}$, образовавшихся в объеме как результат эволюции плотных каскадов атомных смещений. Из экспериментальных данных установлено среднее значение диаметра радиационного кластера (обедненной зоны), которое составило 3,2 нм.

Настоящая работа посвящена экспериментальному исследованию атомного строения радиационных дефектов в твердом теле, инициированных взаимодействием нейтронного излучения с веществом. Основная цель заключалась в анализе структуры радиационных нарушений как на атомно-чистой поверхности, так и в объеме чистой платины, образующихся при низкотемпературном облучении промежуточными и быстрыми (E>0,1 МэВ) нейтронами методом полевой ионной микроскопии (ПИМ). ПИМ позволяет в атомном масштабе проводить прямое прецизионное изучение дефектов кристаллической решетки материала, возникающих в результате каскадов атомных смещений. В то же время метод дает возможность анализировать объект исследования в объеме путем контролируемого последовательного удаления поверхностных атомов электрическим полем. Следует отметить, что работ, выполненных с помощью ПИМ и посвященных изучению нейтронных повреждений в чистых металлах, считанное количество [1–4].

В качестве объекта облучения служила платина (чистота 99,99 %). Заготовки образцов для ПИМ облучались в реакторе ИВВ-2М при температуре ~310 К до флюенсов нейтронов $6{,}7\cdot10^{21}$ и $3{,}5\cdot10^{22}$ м$^{-2}$. При выбранных дозах облучения вероятность перекрытия отдельных каскадов атомных смещений пренебрежимо мала. Из облученных заготовок методом электролитического полирования приготавливались образцы-острия с радиусом закругления вершины 10...20 нм. Регистрируя фото- или видеокамерой ионные изображения поверхности при контролируемом удалении атомных слоев, анализировали структурное состояние приповерхностных объемов материала. Полевой ионный микроскоп был снабжен микроканальным усилителем яркости, хладагентом служил жидкий азот (77 К), в качестве изображающего газа использовали неон.

В кристаллической решетке Pt, облученной до флюенса $6{,}7\cdot10^{21}$ м$^{-2}$, были обнаружены радиационные повреждения, которые являются результатом взаимодействия нейтронов с атомами кристаллической решетки. Структура дефектов выявлялась в процессе поштучного удаления поверхностных атомов платины электрическим полем. Обнаруженные дефекты представляли собой, как правило, либо отдельные вакансии и небольшие вакансионные комплексы с размерами, сравнимыми с межатомным расстоянием, либо междоузельные атомы.

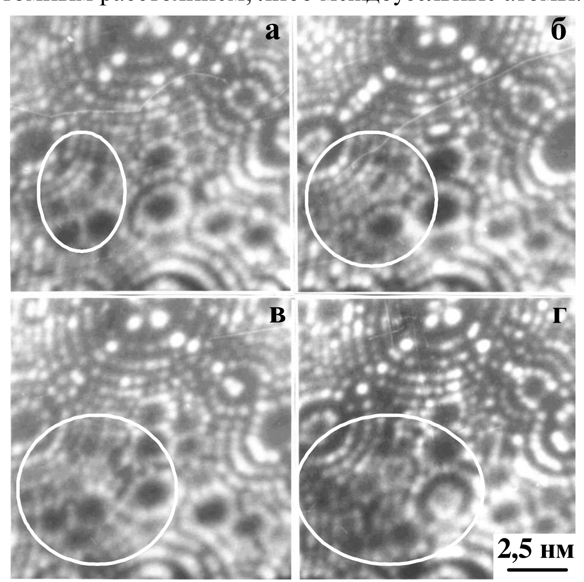


Рис. 1. *Неоновые изображения дефектных участков облученной платины (отмечена обедненная зона в процессе последовательного удаления атомных слоев): а) исходное; б) отличается от «а» на один атомный слой; в) отличается от «б» на два атомных слоя; г) отличается от «в» на два атомных слоя*

При увеличении флюенса нейтронов до $3{,}5\cdot10^{22}$ м$^{-2}$ в кристаллической решетке Pt было обнаружено большее количество радиационных повреждений. На рис. 1 приведены типичные ионные микрокартины, последовательно полученные в процессе контролируемого удаления поверхностных атомов. Эти результаты позволили построить пространственное распределение радиационных повреждений в объеме кристаллической решетки Pt после нейтронного облучения и, таким образом, установить структуру радиационных кластеров. Соответствующая схематическая карта представлена на рис. 2. Анализ ионного контраста рассматриваемой дефектной области показал, что она представляет собой обедненную зону (т.е. область с локально повышенной концентрацией вакансий) с «поясом»

междоузельных атомов. Это наблюдение подтверждает гипотезу [5], согласно которой в металле каскад развивается так, что из центральной его части (наиболее возмущенной области) выносится большое число атомов посредством цепочек атомных замещений. По нашим оценкам средняя концентрация вакансий в обедненных зонах составила 9 %, а концентрация междоузельных атомов – 1,5 %.

В работе была предпринята попытка выяснить пространственную геометрию обедненных зон в платине, облученной до флюенса быстрых нейтронов $3{,}5\cdot10^{22}$ м$^{-2}$. Разброс линейных размеров зон достаточно велик – от ~1 до 8 нм. С целью определения возможной анизотропии анализировалась форма обедненных зон в стандартном режиме путем контролируемого испарения атомных слоев электрическим полем. Это позволило осуществлять количественный анализ геометрии дефектных областей. В результате заметной анизотропии формы обедненных зон обнаружено не было. Из полученных данных следует, что конфигурация зон не соответствует какой-либо простой геометрической фигуре, т.к. составляющие их вакансии расположены крайне нерегулярно.

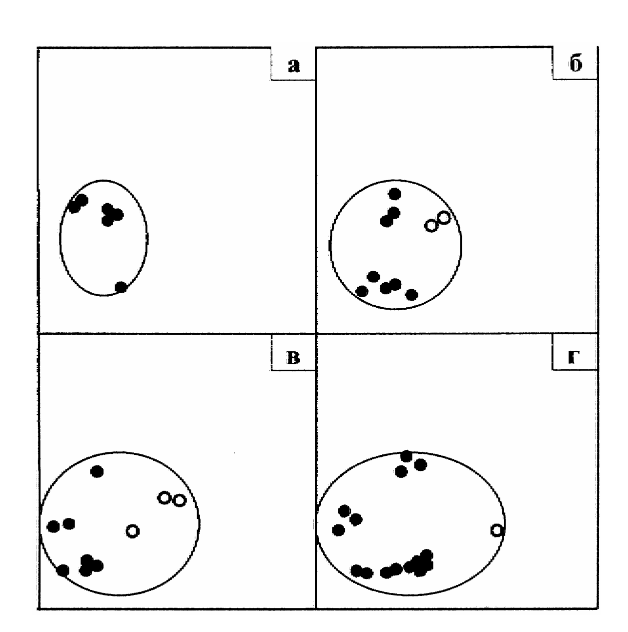


Рис. 2. Схематическая карта рис. 1. Распределение дефектов в облученной до флюенса промежуточных и быстрых (E>0,1 МэВ) нейтронов $3{,}5\cdot10^{22}$ м$^{-2}$ платине. Отмечены только единичные дефекты. Заштрихованный кружок – вакансия; незаштрихованный – междоузельный атом

Изучение большого количества микроснимков поверхности облученной платины позволило измерить поперечные и продольные размеры отдельных обедненных зон (по результатам определения локальных радиусов кривизны вершины эмиттера и соответствующих линейных расстояний, а также путем подсчета испаренных полем атомных слоев). С учетом отсутствия анизотропии формы поврежденных зон, построена гистограмма их распределения по размерам (рис. 3) и определено среднее значение диаметра радиационного кластера, которое составило 3,2 нм. Помимо размерных характеристик кластеров оценивалась их концентрация. Экспериментально измеренная плотность таких радиационных нарушений в объеме составила $9\cdot10^{22}$ м$^{-3}$.

Реакторные нейтроны с энергиями от 0,1 до 10 МэВ образуют в Pt атомы отдачи с энергиями не более 203 кэВ (что соответствует максимальной передаче энергии). С учетом относительно малого сечения взаимодействия нейтрона (и, соответственно, большой величины его свободного пробега) каждый каскад атомных смещений формируется одним первичным атомом отдачи (следующий атом отдачи образуется нейтроном далеко за пределами каскада, а также, с вероятностью близкой к единице, и за пределами облучаемого образца). Моделирование таких индивидуальных каскадов с помощью программы TRIM, для указанного диапазона энергий, подтверждает полученные нами данные об отсутствии анизотропии их формы. Так, при энергии первичного атома отдачи равной 10 кэВ поперечный и продольный размеры каскада равны, соответственно, 3,6 и 3,9 нм, а при энергии 203 кэВ – 5,7 и 5.8 нм. Средняя энергия атомов отдачи, рассчитанная с учетом вида энергетического спектра нейтронов, равна ~25 кэВ, что соответствует среднему продольному и поперечному размерам каскада порядка 5,7 и 5,8 нм. Экспериментально измеренная величина обедненных зон (3,2 нм) несколько меньше теоретически рассчитанной. Это связано с тем, что моделировались радиационные кластеры, образовавшиеся непосредственно после прохождения каскада, а наблюдаемые в микроскопе обедненные зоны представляли собой области компактно расположенных дефектов, выживших после завершения процессов внутрикаскадной диффузии, что предполагает частичную аннигиляцию дефектов и их миграцию на стоки.

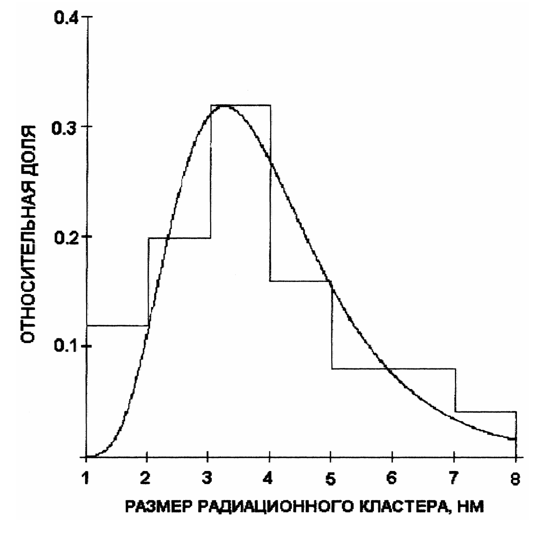


Рис. 3. Распределение радиационных кластеров по размерам в платине, облученной нейтронами до флюенса промежуточных и быстрых (E>0,1 МэВ) нейтронов $3{,}5\cdot10^{22}$ м$^{-2}$ по данным ПИМ

Таким образом, облучение платины нейтронами до флюенса $6,7\cdot10^{21}$ м$^{-2}$ привело к формированию в ней дефектной структуры, для которой характерна повышенная концентрация единичных точечных дефектов и их комплексов, по размеру сравнимых с межатомным расстоянием. При повышении флюенса до $3,5\cdot10^{22}$ м$^{-2}$ в облученной платине образовались радиационные кластеры (обедненные зоны с «поясом» междоузельных атомов), средний размер которых составил 3,2 нм. Экспериментально измеренная концентрация радиационных кластеров в объеме Pt составила $9\cdot10^{22}$ м$^{-3}$.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 04-02-17602-а) и программы государственной поддержки ведущих научных школ РФ (грант НШ-639.2003.2). Работа поддержана также Уральским отделением Российской академии наук (грант молодых ученых и аспирантов).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Attardo M.J., Galligant J.M. Presence of depleted zones in platinum // Physical Review Letters. – 1966. – V. 17. – № 4. – P. 191–193.
2. Attardo M.J., Galligant J.M. Annealing studies of irradiated platinum // Physical Review. – 1967. – V. 161. – № 3. – P. 558–568.
3. Bowkett K.M., Hren J., Ralph B. A study of neutron damage with the field-ion microscope, in electron microscopy // Proc. European Conf., 3rd, Prague, Czechoslovakia, Publishing House of the Czechoslovak Academy of Sciences, 1964. – P. 191.
4. Bowkett K.M. et al. A study of fission fragment damage in tungsten with field-ion microscope // Phil. Mag. – 1965. – V. 11. – P. 651–665.
5. Seeger A.K. // In Proc. of the Second United Nations Intern. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy (United Nations, Geneva, Switzerland). – 1958. – V. 6. – P. 250.